

28FEB 2005

0.0/525738

特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70] RECEIVED

RECEIVED				
0 5 MAR 2004				
WIPO	PCT			

出願人又は代理人 の書類記号 E05110PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。					
国際出願番号 PCT/JP03/07460	国際出願日 (日.月.年) 12.06.2003 優先日 (日.月.年) 30.08.2002					
国際特許分類 (IPC)	C1' C22C45/00, C22C9/00					
出願人(氏名又は名称)	科学技術振興事業団					
1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。 2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。 区 この国際予備審査報告には、附属審類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属事類は、全部で 5 ページである。 3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。 I 区 国際予備審査報告の基礎						
国際予備審査の簡求告を受理した日 03.09.2003 国際予備審査報告を作成した日 18.02.2004						
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/J) 郵便番号100-891 東京都千代田区霞が関三丁目	5 初野 一天					

国際予備審査報告

国際出願番号 PCT/JP03/07460

I. 国際予備審査報告の基礎						
1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。 (法第6条 (PCT14条) の規定に基づく命令に 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。 PCT規則70.16,70.17)						
出願時の国際出願書類						
X 明細書 第 1-6,8,12 ページ、 出願時に提出されたもの 明細書 7,9-11 コ際予備審査の請求書と共に提出されたもの 明細書 第 ページ、 一						
X 請求の範囲 第						
X 図面 第 1-3 ページ /図 、出願時に提出されたもの 図面 第 ページ/図、国際予備審査の請求告と共に提出されたもの 図面 第 ページ/図、 付の書簡と共に提出されたもの						
明細書の配列表の部分 第ページ、 出願時に提出されたもの 明細書の配列表の部分 第ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 明細書の配列表の部分 第 ページ、 付の書簡と共に提出されたもの						
2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。						
上記の書類は、下記の言語である 語である。						
 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語 □ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語 □ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語 						
3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。						
□ この国際出願に含まれる書面による配列表 □ この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表 □ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表 □ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表 □ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった □ 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。						
4. 補正により、下記の書類が削除された。 明細書 第 間求の範囲 第 図面 図面の第						
5. □ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)						
·						

国際予備審查報告

国際出願番号 PCT/JP03/07460

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能 文献及び説明	常性についての法第12条(PC	T 3 5 条(2)) に定める見解、そ	れを裏付ける
1. 見解		•	
新規性(N)	請求の範囲 請求の範囲 	1, 2	有 無
進歩性(IS)	・ 請求の範囲 	1, 2	有 無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲 請求の範囲	1, 2	有 無
2. 文献及び説明 (PCT規則70.7) 文献1:WO 02/053	791 A1 (科学	支術振興事業団)	

2002.07.11 文献2:JP 9-20968 A (財団法人電気磁気材料研究所) 1997.01.21 文献3:WO 00/26425 A1 (科学技術振興事業団)

2000.05.11

請求の範囲1,2に記載された発明は、国際調査報告で引用された何れの文献にも 開示されておらず、新規性を有する。

特に、Cu-(Zr, Ti)系ガラス合金に所定量のA1やGaを添加することで、ガラス形成能、強度及びヤング率の増大を図ることに関しては、何れの文献にも関示されていない。

以下とする。

さらに、5原子%までのAg、Pd、Au、Pt元素の添加によって、過冷却液体域の広さは増大するが、<math>5原子%を超えると非晶質形成能力が低下するので、添加する場合は<math>5原子%以下とする。これらの付加的な元素とA1、Ga元素量の総量、すなわち上記の組成式で<math>b+c+d+eは15原子%以下、より好ましくは10原子%以下とする。総量が<math>15原子%を超えると、ガラス形成能の低下が好ましくない程度になる。

本発明のCu基非晶質合金は、溶融状態から公知の単ロール法、双ロール法、回転液中紡糸法、アトマイズ法などの種々の方法で冷却固化させ、薄帯状、フィラメント状、粉粒体状の非晶質固体を得ることができる。また、本発明のCu基非晶質合金は大きな非晶質形成能を有するため、上述の公知の製造方法のみならず、溶融金属を金型に充填鋳造することにより任意の形状の非晶質合金を得ることもできる。例えば、代表的な金型鋳造法においては、合金を石英管中でアルゴン雰囲気中に溶融した後、溶融金属を0.5~1.5 Kg·f/cm²の噴出圧で銅製の金型内に充填凝固させることにより非晶質合金塊を得ることができる。更に、ダイカストキャスティング法及びスクイズキャスティング法などの製造方法を適用することもできる。

(実施例)

15

以下、本発明の実施例について説明する。表1に示す合金組成からなる材料(実施例1~22)について、アーク溶解法により母合金を溶製した後、単ロール液 体急冷法により約20μmの薄帯試料を作製した。そして、薄帯試料のガラス遷 移温度(Tg)、結晶化開始温度(Tx)を示差走査熱量計(DSC)より測定した。こ

補正された用紙(条約第34条) Best Available Copy

1 (表1)

5

10

	合金組成 (at%)	T _g (K)	T _x (K)	T _x -T _g (K)	$T_{\rm g}/T_{\rm m}$	V _f -Amo.
実施例 1	Cu ₆₀ Zr ₃₅ A1 ₅	755	801	46	0. 59	100
実施例 2	Cu ₅₅ Zr ₄₀ A1 ₅	723	800	77	0. 62	100
実施例 3	$\mathrm{Cu_{50}Zr_{45}Al_{5}}$	701	770	69	0. 60	100
実施例 4	Cu _{52.5} Zr _{42.5} A1 ₅	709	781	72	0.61	100
実施例 5	Cu ₅₅ Zr _{42, 5} Al _{2, 5}	705	773	68	0.61	100
実施例 6	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Al ₅	777	862	85	0. 60	100
実施例 7	Cu ₅₀ Hf ₄₅ Al ₅	765	857	92	0. 62	100
実施例 8	Cu _{52.5} Hf ₄₀ A1 _{7.5}	779	834	55	0. 63	100
実施例 9	Cu ₅₀ Hf _{42.5} Al _{7.5}	780	835	55	0. 63	100
実施例 10	Cu _{52.5} Hf _{42.5} Al ₅	771	849	78	0. 59	100
実施例 11	Cu ₅₅ Hf _{37.5} Al _{7.5}	776	863	87	0. 61	100
実施例 12	Cu ₅₅ Hf _{42.5} Al _{2.5}	769	831	62	0.60	100
実施例 13	Cu ₅₀ Zr _{22.5} Hf _{22.5} Al ₅	790	843	53	0. 62	100
実施例 14	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Ga ₅	730	780	50	0.61	100
実施例 15	Cu _{52.5} Zr _{42.5} Ga ₅	728	777	49	0. 61	100
実施例 16	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Ga ₅	784	847	63	0. 58	100
実施例 17	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} Ga _{2.5}	728	792	64	0.61	100
実施例 18	Cu ₅₀ Zr ₄₀ A1 ₅ Nb ₅	721	771	50	0.61	100
実施例 19	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Au ₅	735	815	80	0. 61	100
実施例 20	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Y ₅	721	795	74	0.61	100
実施例 21	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} Sn _{2.5}	707	.785	78	0.61	100
実施例 22	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2,5} B _{2,5}	713	792	79	0.61	100
比較例1	Cu ₇₀ Zr ₂₀ Al ₁₀		_	_		50<
比較例 2	Cu ₇₀ Hf ₂₀ Al ₁₀		_			50<
比較例3	$Cu_{55}Zr_{20}Al_5Ni_{10}$	_	_			50<
比較例 4	Cu ₆₀ A1 ₄₀	_	-			10<
比較例 5	Cu ₆₀ Zr ₃₀ Ti ₁₀	713	750	37	0.61	100
比較例 6	Cu ₆₀ Hf ₂₀ Ti ₂₀	730	768	38	0. 61	100
比較例7	Cu ₆₀ Zr ₄₀	717	777	60	0.60	91
比較例8	Cu ₅₅ Zr ₃₅ Ti ₁₀	680	727	47	0. 59	100
比較例 9	Cu ₅₃ Zr ₃₅ Al ₅ Ti ₇	721	753	32	0.54	50<

20

1 5

1 (表2)

1 0

15

20

		,		
	合金組成	σ_{f}	E	Hv
	(at%)	(MPa)	(GPa)	
実施例1	$Cu_{60}Zr_{35}Al_{5}$	2265	119	603
実施例 2	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Al ₅	2220	116	581
実施例3	$Cu_{50}Zr_{45}Al_{5}$	1921	103	546
実施例 4	$Cu_{52.5}Zr_{42.5}Al_{6}$	2130	112	568
実施例 5	$Cu_{66}Zr_{42,5}Al_{2,6}$	2200	115	589
実施例 6	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Al ₅	2280	121	642
実施例 7	$Cu_{50}Hf_{45}Al_{5}$	2320	134	667
実施例8	$Cu_{52.5}Hf_{40}Al_{7.5}$	2295	128	644
実施例 9	$Cu_{50}Hf_{42,5}Al_{7,5}$	2372	137	673
実施例 10	Cu _{52, 5} Hf _{42, 5} A1 ₅	2380	137	681
実施例 11	Cu ₅₅ Hf _{37,5} Al _{7,5}	2412	140	698
実施例 12	Cu ₅₅ Hf _{42,5} Al _{2,5}	2253	131	692
実施例 13	$Cu_{50}Zr_{22.5}Hf_{22.5}Al_{5}$	2130	122	591
実施例 14	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Ga ₅	2219	117	585
実施例 15	Cu _{52, 5} Zr _{42, 5} Ga ₅	2100	115	571
実施例 16	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Ga ₅	2275	126	652
実施例 17	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2,5} Ga _{2,5}	2205	115	691
実施例 18	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ N b ₅	2312	131	674
実施例 19	$Cu_{50}Zr_{40}Al_{5}Au_{5}$	2245	117	597
実施例 20	$Cu_{50}Zr_{40}Al_{5}Y_{5}$	2180	114	575
実施例 21	$\cdot \text{Cu}_{50}\text{Zr}_{45}\text{Al}_{2.5}\text{Sn}_{2.5}$	2200	112	561
実施例 22	$Cu_{50}Zr_{45}Al_{2.5}B_{2.5}$	2175	119	559
比較例1	$\mathrm{Cu_{70}Zr_{20}Al_{10}}$	-	-	564
比較例 2	$Cu_{70}Hf_{20}Al_{10}$	÷	_	624
比較例3	$Cu_{55}Zr_{30}Al_{5}Ni_{10}$.		-	578
比較例 4	Cu ₆₀ Ti ₄₀			566
比較例 5	$Cu_{60}Zr_{30}Ti_{10}$	2115	114	504
比較例 6	$Cu_{60}Hf_{20}Ti_{20}$	2080	135	620
比較例7	$Cu_{60}Zr_{40}$	1880	102	555
比較例8	$Cu_{55}Zr_{35}Ti_{10}$	1860	112	567
比較例 9	$Cu_{35}Zr_{35}Al_{5}Ti_{7}$			584

表1より明らかなように、各実施例の非晶質合金は、Cu-Hf又はCu-Zr-Hf系非晶質合金系では△Txが50K以上と大きく、Cu-Zr系非晶質合金でも△Txは45 K以上であり、0.57以上の換算ガラス化温度を示し、直径1mmの非晶質合金棒が容易に得られた。

これに対して、比較例 $1\sim 2$ の合金は、(A1,Ga) が 1 0 原子%であるが、(Zr,Hf) が 3 5 原子%未満であり、大きなガラス形成能を持っておらず、直径 1 mm の棒状非晶質合金が得られなかった。

比較例3の合金は、Ni量が5原子%を超え、大きなガラス形成能を持っておらず、直径1mmの棒状非晶質合金が得られなかった。比較例4の合金は、基本元素 (Zr, Hf) が存在しておらず、直径1mmの棒状非晶質合金が得られなかった。比較例5及び比較例6の合金は、基本元素 (A1, Ga) が存在しておらず、直径1mmの棒状非晶質合金が得られたが、過冷却液体域が45K未満であり、良好な加工性を持っていない。

比較例7及び8の合金は、Zrが35原子%以上であり、過冷却液体域が45K以上であるが、良好な加工性を有するが、圧縮強度が小さい。

比較例9の合金は、Tiが5原子%を超えると、換算ガラス化温度Tg/Tlがかなり 低下したので直径1mmの棒状非晶質合金が得られなかった。

表2より明らかなように、各実施例の非晶質合金は、圧縮破断強度(σ f:MPa
) が最小で1921、最大で2412であり、硬度(室温ビッカース硬度:Hv)
が最小で546、最大で698であり、ヤング率(E:Gpa)が最小で103、最
大で140であり、1900MPa以上の圧縮破断強度、500Hv以上のビッカース硬度及び100GPa以上のヤング率を示すことが分かる。

補正された用紙(条約第34条) Best Available Copy

請求の範・囲

- 1. (補正後) 式: Cu100-a-b(Zr, Hf)a(A1, Ga)b [式中、a, bは原子%で、35原子%≦a≦50原子%、2原子%≦b≦10原子%である]で示される組成(ただし、Cu50at%以上)を有する非晶質相を体積百分率で90%以上含み、△Tx=Tx-Tg(ただし、Txは、結晶化開始温度、Tgは、ガラス遷移温度を示す。)の式で表わされる過冷却液体領域の温度間隔△Txが45K以上、Txが770K以上、金型鋳造法により直径又は厚さ1mm以上、非晶質相の体積比率90%以上の棒材又は板材が得られ、圧縮強度1900MPa以上、ヤング率100GPa以上、ビッカース硬さ500Hv以上であることを特徴とするCu基非晶質合金。
- 2. (補正後) 式: Cu100-a-b (Zr, Hf) a (A1, Ga) bMcTdQe [式中、Mは、Fe, Ni, Co, Ti, Cr, V, Nb, Mo, Ta, W, Be, 又は希土類元素よりなる群から選択される1種又は2種以上の元素、Tは、Ge, Sn, Si, B元素よりなる群から選択される1種又は2種以上の元素、Qは、Ag, Pd, Pt, Au元素よりなる群から選択される1種又は2種以上の元素であり、a, b, c, d, eは原子%で、35原子% \leq a \leq 50原子%、2原子% \leq b \leq 10原子%、0 \leq c \leq 5%、0 \leq d \leq 5%、0 \leq e \leq 5%、b+c+d+e \leq 15原子%である]で示される組成(ただし、Cu50at%以上)を有する非晶質相を体積百分率で90%以上含み、 Δ Tx=Tx-Tg(ただし、Txは、結晶化開始温度、Tgは、ガラス遷移温度を示す。)の式で表わされる過冷却液体領域の温度間隔 Δ Txが45K以上、Txが770K以上、金型鋳造法により直径又は厚さ1mm以上、非晶質相の体積比率90%以上の棒材又は板材が得られ、圧縮強度1900MPa以上、ヤング率100GPa以上、ビッカース硬さ500Hv以上であることを特徴とするCu基非晶質合金。





PEB 200 PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference	T	See Notifi	cation of Transmittal of International			
E05110PCT	FOR FURTHER ACTION		Examination Report (Form PCT/IPEA/416)			
International application No.	International filing date (day	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	Priority date (day/month/year)			
PCT/JP2003/007460	12 June 2003 (12.0	6.2003)	30 August 2002 (30.08.2002)			
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C22C 45/00, 9/00						
Applicant JAPAN SC	IENCE AND TECHNOI	LOGY CORI	PORATION			
This international preliminary exame and is transmitted to the applicant ac	ination report has been prepare cording to Article 36.	ed by this Intern	national Preliminary Examining Authority			
2. This REPORT consists of a total of	3 sheets, include	ling this cover s	heet.			
amended and are the basis for	ied by ANNEXES, i.e., sheets r this report and/or sheets cont Administrative Instructions ur	aining rectifica	on, claims and/or drawings which have been tions made before this Authority (see Rule			
These annexes consist of a to	tal of 5 sheets.					
3. This report contains indications relat	ting to the following items:					
I Basis of the report			•			
п Priority			•			
III Non-establishment o	of opinion with regard to novel	ty, inventive sto	ep and industrial applicability			
IV Lack of unity of invo	ention					
V Reasoned statement citations and explana	under Article 35(2) with regar ations supporting such stateme	d to novelty, in nt	ventive step or industrial applicability;			
VI Certain documents o	ited					
VII Certain defects in the	e international application					
VIII Certain observations	VIII Certain observations on the international application					
Date of submission of the demand Date of completion of this report						
03 September 2003 (03.09.2003) 18 February 2004 (18.02.2004)						
Name and mailing address of the IPEA/JP	Autho	orized officer				
Facsimile No.	Telep	hone No.				

Translation





International application No.

PCT/JP2003/007460

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

L. Bas	sis of the re	report				
1. W	ith regard to	to the elements of the international application:*	·			
	the inte	ternational application as originally filed				
\geq	the des	escription:				
	pages	1-6, 8, 12	, as originally filed			
	pages	7, 9-11	, filed with the demand			
	pages					
∇	the clai					
L	pages		, as originally filed			
	pages					
	pages		, filed with the demand			
	pages					
	7 the dra	rawings:				
۷	pages		as originally filed			
	pages		, filed with the demand			
	pages					
	٦					
L_		uence listing part of the description:				
	pages		 : - •			
	pages pages					
	-					
th	e internation	I to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authori ional application was filed, unless otherwise indicated under this item. ents were available or furnished to this Authority in the following language	ty in the language in which which is:			
		anguage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)				
ΙĒ	~~	anguage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).	···			
	_	anguage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examinat	tion (under Rule 55.2 and/			
3. W	ith regard eliminary e	rd to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international apprexamination was carried out on the basis of the sequence listing:	olication, the international			
	contair	ained in the international application in written form.				
	filed to	together with the international application in computer readable form.				
	furnish	shed subsequently to this Authority in written form.				
	furnish	shed subsequently to this Authority in computer readable form.				
		statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyonational application as filed has been furnished.	and the disclosure in the			
		statement that the information recorded in computer readable form is identical to the writing furnished.	ritten sequence listing has			
4. 	The an	amendments have resulted in the cancellation of:				
_	\Box	the description, pages				
		the claims, Nos.				
	П	the drawings, sheets/fig				
5.	This rebeyond	report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they had the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**	nave been considered to go			
* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).						
** An	** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.					

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

Internal application No.
PCT/JP 03/07460

v.	Reasoned statement under Article 3 citations and explanations supporti	5(2) with regard to no ng such statement	velty, inventive step or industrial appli	cability;
1.	Statement			
	Novelty (N)	Claims	1, 2	YES
		Claims		NO
	Inventive step (IS)	Claims	1, 2	YES
		Claims		NO
	Industrial applicability (IA)	Claims	1, 2	YES
		Claims		NO

- 2. Citations and explanations
 - Document 1: WO 02/053791 A1 (Japan Science and Technology Corp.), 11 July 2002
 - Document 2: JP 9-20968 A (The Research Institute for Electric and Magnetic Materials), 21 January 1997
 - Document 3: WO 00/26425 A1 (Japan Science and Technology Corp.), 11 May 2000

The invention that is set forth in claims 1 and 2 is not disclosed in any of the documents that are cited in the international search report; therefore, it is novel.

Specifically, the feature of increasing the workability, strength and young's modulus of glass by adding a predetermined amount of Al and/or Ga to a Cu-(Zr, Ti) based glass alloy is not disclosed in any of the documents.